

京都大学原子炉実験所 正員 筒井 天尊  
下浦 一邦

## 〔まえがき〕

放射性廃液の凝集沈殿処理は特定の溶存放射性核種に対する除染効果を高めるために凝集剤の選択とその薬注量、処理液のpH調整条件などに特色があり、一般には、水酸化鉄凝集およびリン酸カルシウム凝集がよく用いられている。凝集沈殿槽に沈積する含水率0.995程度で難ろ過性の汚泥を沈降濃縮したのち凍結法で減容する場合について、凍結速度など操作条件と汚泥の脱水性との相関および処理とともに汚泥の物性変化などについて検討した。

## 〔実験〕

汚泥の凍結と融解のための装置としては、(I)既報<sup>1)</sup>の京大原子炉汚泥凍結再融解処理装置(処理能力: 200 l/d, 2系列), (II)低温恒温槽(冷気循環式)および(III)図1に示す装置を用いた。測定した汚泥の主要値と生成条件を表1に示す。なお(II)(III)の場合、設定温度に保った冷アライン(冷気)中で凍結させた試料はすべて恒温水槽中(40°C)で融解した後メスシリンドに移し、その含水率と諸物性値は5時間後の沈降汚泥について計測した。

## 〔結果と考察〕

図2に(II), (III)における汚泥凍結温度Tと含水率 $\epsilon_2$ に関する実験結果を示す。ここでTは試料中心部の最低温度

(表1) 原汚泥			凝集処理条件 (S-1,3は水道水, S-2は放射性廃水が原水)				
番号	試 料	$\epsilon_1(-)$	粘 度 (cp) at 20°C	薬 注 量 (ppm)	pH	攪拌 条 件 (rpm-min)	
S-1	水酸化鉄汚泥	0.98	2.0	$\text{FeCl}_3: 10^3 \text{ (as Fe)}$ , $\text{Na}_2\text{CO}_3: 10^3$	10.0	350-15, 30-25	
S-2	"	0.99 <sub>3</sub>	1.5	" : $10^2$ (" ), " : $10^2$	"	350-15, 2-40	
S-3	リン酸カルシウム汚泥	0.97	1.65	$\text{Na}_3\text{PO}_4: 10^4$ , $\text{CaCl}_2: 2 \times 10^3$	12.0	350-15, 30-25	

で最大の減容効果を示すこと、および、原汚泥の含水率が低ければ(S-1',  $\epsilon_1 = 0.96$ , S-1の3回検査)より脱水された汚泥が得られる傾向があるとあらわれる。

冷アライン槽に浸漬する場合には氷缶式製氷における原水の結氷に関する式<sup>2)</sup>が適用出来るから、汚泥の結氷時間は、結氷時ににおける汚泥と冷アラインとの温度差 $\Delta \theta$ に反比例するといえる。凍結速度にも関係する变量 $\Delta \theta$ が $\epsilon_2$ に及ぼす影響を調べる目的で $\theta = -15, -30, -70$ のアライン槽で $T = -15$ まで汚泥を凍結させた後、 $T = -15$ の槽内で保持( $t = 25$ )した場合の結果を図3に示す。この場合、結氷速度比 $\eta$ が小さいほど $\epsilon_2$ が低くなる傾向がわかる。このことは(II)に比較して試料との熱伝達が小さい(II)の装置では、図3

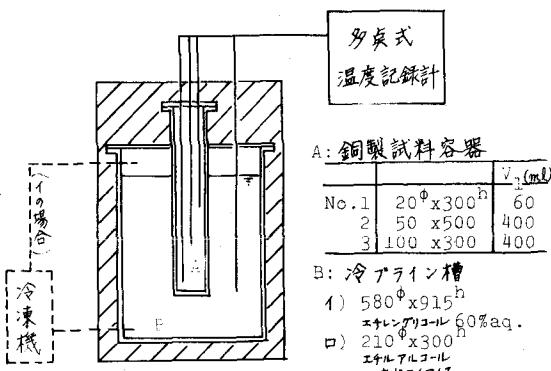


図 1

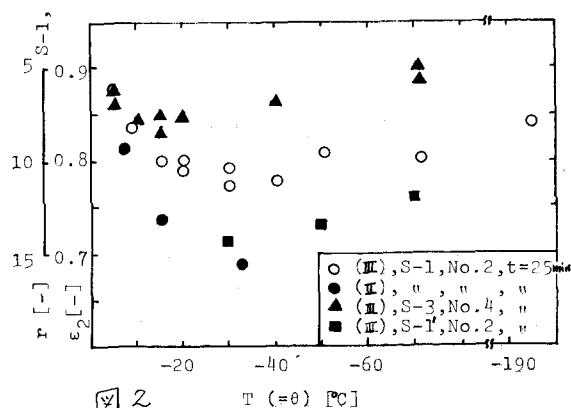


図 2

(図2)に示したように同一凍結温度に対し、より低い $\epsilon_2$ が得られることからもいえる。図2は $T=-\theta$ の場合であって、 $\epsilon_2$ に及ぼす $\Delta\theta$ (または $\phi$ )の影響は、S-1の場合、 $T=-5 \sim -15$ の範囲に比較して $T=-20 \sim -70^{\circ}\text{C}$ では小さくなっている。なお、この傾向は液体窒素をアラインに用いた凍結時にもいえる。すなわちS-1では、 $T \leq -20$ の条件であれば $\Delta\theta$ を大きく設計して処理時間を短縮することが可能である。

汚泥の減容比 $r$ と含水率 $\epsilon$ との関係を(1)式で表わし、本実験範囲の数値を図4に示す。

$$r = V_1 / V_2 = (1 - \epsilon_2) / (1 - \epsilon_1) \quad \dots \dots (1)$$

ただし、 $V = W / \rho_w + S / \rho_s$ ,  $\epsilon = W / (W + S)$ 。

特定の $\epsilon_1$ に対して、 $r$ は $\epsilon_2$ で決まるが $(\epsilon_1 - \epsilon_2)$ が大きくなるほど、汚泥減容効果の増加率は減少していくため実用上は有効な $(\epsilon_1 - \epsilon_2)$ の範囲が存在することになる。通常の場合、生成汚泥を1週間程度静置して沈降濃縮しても $\epsilon_2 \approx 0.98$ 程度であるから $\epsilon_2 = 0.7 \sim 0.8$ が得られれば $r = 15 \sim 10$ となり効果的な脱水をしたといえる。

凍結処理後沈降分離した汚泥は分離液との比重差が大きくなるとともにろ過の抵抗が低下しているから、実用規模の装置では真空ろ過器または遠心機を用いて機械的に脱水するのが能率的である。たとえば図2に示した処理後のS-1汚泥を遠心分離(1800 rpm-1分)すると遠心場での圧密効果も加算されて、 $T = -5$ の場合を除いて、 $\epsilon_2 \approx 0.8 \sim 0.7$ の汚泥が容易に分離出来る。汚泥の粘度は、S-1の場合 $\epsilon_2 = 0.9, 0.8, 0.75, 0.7$ でそれぞれ8, 30, 50, 100 cp程度、またS-3では $\epsilon_2 = 0.9, 0.8, 0.75$ でそれぞれ5, 30, 70 cp程度である。装置(I)では、二槽の凍結再融解槽を用いて交互に凍結、融解操作を繰り返す方式をとっている。通常廃液処理プラントからの処理汚泥を $T = -20^{\circ}\text{C}$ まで凍結したのち融解し $\epsilon_2 \approx 0.75$ の汚泥を上澄液と分離している。S-2の場合 $\epsilon_2 = 0.77$ ,  $r = 34$ であった。凍結と融解に要する時間はそれぞれ約3.5時間でそのうち結氷のための時間は約2時間( $\Delta\theta \approx 10^{\circ}\text{C}$ )である。なお、京大原子炉では原則として、弱放射性廃液( $10^5 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 以下、 $\sim 7 \text{ m}^3/\text{日}$ )を水酸化鉄凝集法で処理している。

### [むすび]

凍結処理装置の作業性を高めるためには、現在、原子力施設で広く採用されている回分式の処理法から連続式処理法へ装置の転換をはかるとともに、冷凍能力を高めて結氷時間と脱水効率を短縮する必要がある。水酸化鉄汚泥の場合には氷結速度の大きい操作をしても減容効果への著しい影響はみとめられない、また、原汚泥の含水率が高ければ処理による脱水効率を低下させる原因となる。

記号  $T$ : 汚泥容積,  $\epsilon$ : 含水率,  $W$ : 水分重量,  $S$ : 固形分重量,  $\rho_w$ : 水分密度,  $\rho_s$ : 固形分密度,  $r$ : 減容比,  $T$ : 凍結温度,  $t$ : 凍結温度保持時間,  $\theta$ : 冷アライン(冷氣)温度,  $\Delta\theta$ : 結氷時ににおける汚泥温度- $\theta$ ,  $\phi$ : 結氷速度比(IV)の装置で $\Delta\theta = 20^{\circ}\text{C}$ における結氷速度を基準とする), 添字1: 原汚泥, 添字2: 処理後汚泥

参考文献 1) 岩井, 間井, 松井: 土木学会第23回年会, II-218(昭43), 間井, 下浦: KURRI-TR-80, p55~62(1970)

2) 日本冷凍協会編: 冷凍空調便覧, p413(1963)

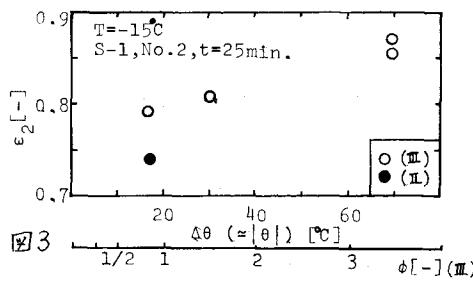


図3  $T = -15^{\circ}\text{C}$   
S-1, No. 2,  $t = 25 \text{ min.}$

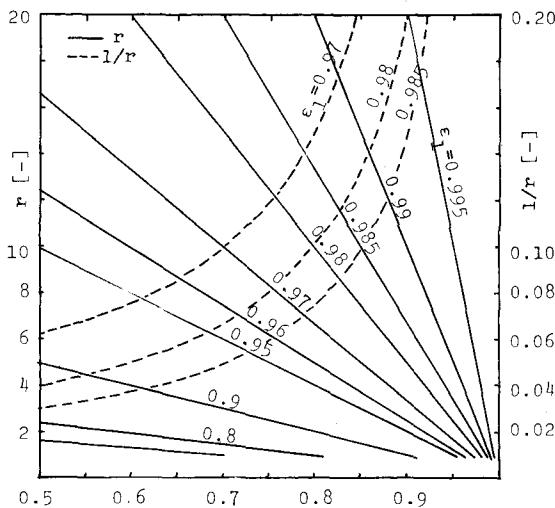


図4

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$

$\epsilon_1 = 0.8, 0.9, 0.95, 0.96, 0.97, 0.98, 0.99, 0.995$

$\epsilon_2 = 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$

$r = \epsilon_1 / (1 - \epsilon_1)$

$1/r = 1 / (1 - \epsilon_1)$